



①⑨ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑫ Pat ntschrift  
⑩ DE 197 57 318 C 1

⑤① Int. Cl.<sup>6</sup>:  
H 01 M 8/02

②① Aktenzeichen: 197 57 318.5-45  
②② Anmeldetag: 23. 12. 97  
④③ Offenlegungstag: -  
④⑤ Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung: 25. 2. 99

DE 197 57 318 C 1

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

⑦③ Patentinhaber:  
Forschungszentrum Jülich GmbH, 52428 Jülich, DE

⑦② Erfinder:  
Dohle, Hendrik, 52249 Eschweiler, DE; Peinecke,  
Volker, Dr., 73730 Esslingen, DE

⑤⑥ Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht  
gezogene Druckschriften:

DE 1 95 31 852 C1  
DE 44 30 958 C1  
DE 44 10 711 C1

⑤④ Schnellheizung für Brennstoffzellen

⑤⑦ Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle mit einer  
Schicht, die als elektrische Heizung ausgestaltet ist.  
Die benötigte Wärme für gute Leistungsdaten kann durch  
diese Schicht unmittelbar an bzw. in der Elektroden-Elek-  
trolyt-Einheit erzeugt werden. Wärme- und damit einher-  
gehende Energieverluste können so imitiert werden. Ins-  
besondere für den Betrieb von Brennstoffzellen mit ver-  
gleichsweise niedrigen Betriebstemperaturen (um die  
130°C) ist die elektrische Heizschicht vorgesehen.

DE 197 57 318 C 1

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle.

Eine Brennstoffzelle weist eine Kathode, einen Elektrolyten sowie eine Anode auf. Der Kathode wird ein Oxidationsmittel, z. B. Luft und der Anode wird ein Brennstoff, z. B. Wasserstoff zugeführt.

Verschiedene Brennstoffzellentypen sind bekannt, so beispielsweise die SOFC-Brennstoffzelle aus der Druckschrift DE 44 30 958 C1 sowie die PEM-Brennstoffzelle aus der Druckschrift DE 195 31 852 C1.

Die SOFC-Brennstoffzelle wird auch Hochtemperaturbrennstoffzelle genannt, da ihre Betriebstemperatur bis zu 1000°C beträgt. An der Kathode einer Hochtemperaturbrennstoffzelle bilden sich in Anwesenheit des Oxidationsmittels Sauerstoffionen. Die Sauerstoffionen passieren den Elektrolyten und rekombinieren auf der Anodenseite mit dem vom Brennstoff stammenden Wasserstoff zu Wasser. Mit der Rekombination werden Elektronen freigesetzt und so elektrische Energie erzeugt.

Die Betriebstemperatur einer PEM-Brennstoffzelle liegt bei ca. 80°C. An der Anode einer PEM-Brennstoffzelle bilden sich in Anwesenheit des Brennstoffs mittels eines Katalysators Protonen. Die Protonen passieren den Elektrolyten und verbinden sich auf der Kathodenseite mit dem vom Oxidationsmittel stammenden Sauerstoff zu Wasser. Elektronen werden dabei freigesetzt und elektrische Energie erzeugt. Der Elektrolyt besteht dann aus einer Polymerelektrolytmembran, so zum Beispiel aus Nafion®.

Mehrere Brennstoffzellen werden in der Regel zur Erzielung großer elektrischer Leistungen durch verbindende Elemente elektrisch und mechanisch miteinander verbunden. Ein Beispiel für ein solches verbindendes Element stellt die aus DE 44 10 711 C1 bekannte bipolare Platte dar. Mittels bipolarer Platten entstehen übereinander gestapelte, elektrisch in Serie geschaltete Brennstoffzellen. Diese Anordnung wird Brennstoffzellenstapel genannt.

Als Brennstoff kann unter anderem Methan oder Methanol vorgesehen werden. Die genannten Brennstoffe werden durch Reformierung oder Oxidation u. a. in Wasserstoff oder wasserstoffreiches Gas umgewandelt.

Unter innenliegender Sperrschicht wird im folgenden eine Zwischenschicht in einem mehrschichtigen Elektrolyten verstanden. Diese Zwischenschicht ist praktisch undurchlässig für alle Stoffe bis auf Protonen. Eine aus einer Palladium-Silber-Legierung bestehende Schicht, an die beidseitig konventionelle Elektrolytschichten angrenzen, stellt eine solche Sperrschicht im vorgenannten Sinne dar. Der Silberanteil beträgt 25 Gew.-% bis 50 Gew.-%.

Die Sperrschicht verhindert vorteilhaft das Durchdringen des verwendeten Brennstoffs oder das Durchdringen von Wasser durch die Elektrolytschicht und vermeidet so Leistungsverluste der Brennstoffzelle.

Die innenliegende Sperrschicht wird in der deutschen Patentanmeldung mit dem amtlichen Aktenzeichen 196 46 487.0 beschrieben.

Brennstoffzellen liefern gute Leistungsdaten nur bei höheren Betriebstemperaturen. Dies gilt insbesondere für eine Elektroden-Elektrolyt-Einheit, die eine innenliegende Sperrschicht aufweist. Bei einer Brennstoffzelle mit einer innenliegenden Sperrschicht muß nämlich sichergestellt sein, daß der Übergang Protonen zu Wasserstoff bei Eintritt in die innenliegende Sperrschicht und der Übergang Wasserstoff zu Protonen bei Austritt aus der Sperrschicht mit geringen Überspannungen erfolgt. Betriebstemperaturen oberhalb von 130°C sind daher zu bevorzugen, um zu guten Leistungsdaten zu gelangen.

Aufgabe der Erfindung ist die Schaffung einer Brenn-

stoffzelle mit einer weiter verbesserten Leistung.

Die Aufgabe wird durch eine Vorrichtung mit den Merkmalen des Hauptanspruchs gelöst.

Die anspruchsgemäße Brennstoffzelle weist eine Schicht auf, die als elektrische Heizung ausgestaltet ist. Die benötigte Wärme für gute Leistungsdaten kann somit unmittelbar an bzw. in der Elektroden-Elektrolyt-Einheit erzeugt werden. Wärme- und damit einhergehende Energieverluste können so minimiert werden.

Die als elektrische Heizung ausgestaltete Schicht kann durchgehend porös sein, um den erforderlichen Stofftransport zu ermöglichen. Es kann sich dabei vorteilhaft um eine lediglich für Protonen durchlässige Sperrschicht handeln, die geeignet innerhalb der Elektroden-Elektrolyt-Einheit platziert ist. So werden unerwünschte, leistungsvermindernde Stoffdurchtritte durch die Brennstoffzelle zugleich verhindert.

Insbesondere ist eine innenliegende Sperrschicht als elektrische Heizung ausgestaltet. Bei dieser Platzierung innerhalb des Elektrolyten befindet sich die elektrisch beheizbare Schicht bei entsprechend dünnem Elektrolyten lediglich ca. 0,1 mm von den Elektroden entfernt. Es werden dann genau die Bereiche beheizt, die für eine hohe Leistung der Brennstoffzelle am wichtigsten sind.

Die erforderliche elektrische Heizleistung kann so minimiert werden. Auch ist eine rasche Aufheizung der Brennstoffzelle auf eine optimale Betriebstemperatur so möglich.

Vorzugsweise für den Betrieb von Brennstoffzellen mit vergleichsweise niedrigen Betriebstemperaturen (um die 130°C) ist die elektrisch beheizbare Schicht vorgesehen.

Als Heizschicht kann eine 10 µm dicke, 10 cm · 10 cm große Pd-Folie mit einem spezifischen Widerstand von 11 µOhm · cm vorgesehen werden. Der Widerstand in Querrichtung beträgt 10,8 mOhm. Ein Strom von 20 A bei einer Spannung in Querrichtung  $U_{\text{quer}} = 216 \text{ mV}$  führt zu einer Leistung  $P$  von 4,32 W.

#### Patentansprüche

1. Brennstoffzelle mit einer Schicht, die als elektrische Heizung ausgestaltet ist.
2. Brennstoffzelle nach vorhergehendem Anspruch, bei der die als elektrische Heizung ausgestaltete Schicht eine Sperrschicht für sämtliche Stoffe bis auf Protonen ist.
3. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei der die als elektrische Heizung ausgestaltete Schicht als Zwischenschicht im Elektrolyten angeordnet ist.

(19) **Federal Republic of Germany** (12) **Patent specification**  
**German Patent and Trademark office** (10) **DE 197 57 318 C1**

(51) Intern. Classification<sup>6</sup>:  
**H 01 M 8/02**

(21) File number: 197 57 318.5-45  
(22) Application date: December 23<sup>rd</sup> 1997  
(43) Disclosure date: -  
(45) Publication date of patent granting: Feb. 25<sup>th</sup> 1999

Opposition can be filed within 3 month of the publication of the granting of the patent.

(73) Patent proprietor:  
Forschungszentrum Jülich GmbH, 52428 Jülich, DE

(72) Inventor:  
Dohle, Hendrik, 52249 Eschweiler, DE;  
Peinecke, Volker, Ph.D., 73730 Esslingen, DE

(56) Publications consulted in the examination of the application:  
DE 195 31 852 C1  
DE 44 30 958 C1  
DE 44 10 711 C1

---

(54) Rapid-action heating for fuel cells

(57) The invention concerns a fuel cell comprising a layer configured as electric heating element. This layer can generate the heat that is required to obtain excellent performance data, directly at or in the electrode-electrolyte unit. Heat losses and the resulting energy losses can thus be minimized. The electrically heated layer is mainly suitable for the operation of fuel cells with comparably low operating temperatures (around 130°C).

The invention concerns a fuel cell.

A fuel cell comprises a cathode, an electrolyte, as well as an anode. <<5>> An oxidant, e.g. air, is supplied to the cathode, and a fuel, e.g. hydrogen, is supplied to the anode. Different fuel cell types are known, as for example the SOFC fuel cell of the publication DE 44 30 958 C1, and the PEM fuel cell of the publication DE 195 31 852 C1. <<10>>

The SOFC fuel cell is also known as high temperature fuel cell, since its operating temperature can be as high as 1000°C. Oxygen ions are formed in the presence of the oxidant at the cathode of a high temperature fuel cell.

<<15>> The oxygen ions pass through the electrolyte and on the anode side recombine with hydrogen, originating from the fuel, to form water. This recombination liberates electrons, and thus generates electric energy. <<20>>

The operating temperature of a PEM fuel cell is approximately 80°C. Protons are formed in the presence of fuel by means of a catalyst at the anode of the PEM fuel cell. The protons pass through the electrolyte, and on the cathode side combine with the oxygen, originating from the oxidant, to form water. <<25>> Hereby, electrons are liberated and electric energy is generated. The electrolyte consists of a polymer membrane, for example Nafion®.

<<30>> Generally, several fuel cells are electrically and mechanically joined by connecting elements to realize high electrical output. An example of such a connecting element is the bipolar plate known from DE 44 10 711 C1. Using bipolar plates it is possible to construct fuel cells that are stacked on top of each other and are electrically connected in series. <<35>> Such an arrangement is called a fuel cell stack.

Among other choices, the provided fuel can be methane or methanol. These fuels are converted to, for example, hydrogen or hydrogen-rich gas by reforming or oxidation. <<40>>

In the following, the term interior barrier layer is to be understood as an intermediate layer in a multi-layered electrolyte. This intermediate layer is practically impermeable for all substances except protons. <<45>> A layer of a palladium-silver alloy, which is surrounded on both sides by conventional electrolyte layers, is an example of such a barrier layer in the previously mentioned sense. The silver content is between 25% to 50% by weight. <<50>> Preferably, the barrier layer prevents the used fuel or water from penetrating through the electrolyte layer, and thus prevents power losses of the fuel cell.

The interior barrier layer is described by the German patent application with the official file number 196 46 487.0. <<55>>

Fuel cells only provide good performance data at higher operating temperatures. This is particularly true for an electrode-electrolyte unit containing an interior barrier layer. <<60>> In a fuel cell with an interior barrier layer it must be ensured that the transition 'protons to hydrogen', when entering the interior barrier layer, and the transition 'hydrogen to protons', when exiting from the barrier layer, takes place with a modest overpotential. <<65>> Thus one prefers operating temperatures above 130°C in order to obtain good performance data.

It is the object of this invention to further improve on the output power of a fuel cell.

This objective is met by a device with the characteristic of the independent claim.

The claimed fuel cell contains a layer that is constructed as electric heating element. <<5>> Thus, the necessary heat required for good performance data can be generated directly at or in the electrode-electrolyte unit. Heat losses and the resulting energy losses can thus be minimized. <<10>>

The layer constructed as electric heating element can be porous throughout to enable the necessary material transport. Advantageously, it is a barrier layer that is only permeable to protons, which is suitably located within the electrode-electrolyte unit. <<15>> In this manner, the undesired and output-reducing penetration of materials across the fuel cell is prevented at the same time.

In particular, an interior barrier layer is constructed as an electric heating element. <<20>> Given a correspondingly thin electrolyte, such a placement within the electrolyte leaves the electrically heated layer at a distance of only 0.1 mm from the electrodes. In this case only the regions are heated that are most important with respect to a high power output of the fuel cell. <<25>>

In this manner it is possible to minimize the required heating capacity. This also allows a rapid heating of the fuel cell to an optimum operating temperature.

The electrically heated layer is mainly suitable for the operation of fuel cells with comparably low operating temperatures (around 130°C). <<30>>

The heating layer can, for example, be a 10cm by 10cm Pd sheet of 10  $\mu$ m thickness with a specific resistance of 11  $\Omega$ hm. The resistance in the lateral direction is 10.8 m $\Omega$ hm. Given a voltage in the lateral direction of  $V_{lat} = 216$  mV, a current of 20 A yields a power  $P = 4.32$  W. <<35>>

Patent claims <<40>>

1. Fuel cell comprising a layer that is constructed as an electric heating element.
2. Fuel cell of the preceding claim wherein the layer constructed as electric heating element is a barrier layer for all substances except protons. <<45>>
3. Fuel cell of one of the preceding claims wherein the layer constructed as electric heating element is an intermediate layer in the electrolyte. <<50>>